

UTILITY MODEL ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: 50-112749

(43) Date of publication of application: 13.09.1975

(51) Int. Cl².

B 01 J 8/04

F 28 D 9/00

(21) Application number: S49-25193

(71) Applicant: MITSUBISHI KASEI CORP.

(22) Date of filing: March 5, 1974

(72) Inventors: AOKI, Motohisa

IMANISHI, Tadashi

KURIBAYASHI, Katsuji

(54) Vapor-phase Contact Reaction Device

(57) Claims:

A vapor-phase contact reaction device characterized in:

placing heat exchanger 2 for exchanging heat through the indirect contact between inlet gas and outlet gas, gas heater 3 and catalyst layer 4 in this order inside outer case 1; providing gas flow path 5, which comprises plural communicating outlets 6 for exhausting gas located symmetrically from catalyst layer 4, between the periphery of catalyst layer 4 and outer casing 1; and exhausting gas introduced into the heat exchanger via gas heater 3, catalyst layer 4, gas flow path 5 and heat exchanger 2.

Brief Description of Drawings:

Drawings show an embodiment of the utility model. Drawing 1 is a cutaway of oblique perspective view, Drawing 2 is a schematic sectional side view, Drawing 3 is a sectional view along the line III-III in Drawing 2, and Drawings 4A and 4B are top and bottom views of the case for the catalyst layer respectively.

1....Outer case,

2....Heat exchanger,

3....Gas heater,

4....Catalyst layer,

5.... Gas flow path,

6.... Communicating outlet

①日本国特許庁
公開特許公報

①特許出願公開
昭52—109499

⑤Int. Cl.².
C 01 C 1/04.

識別記号

⑤日本分類
15 L 111
15 L 12

庁内整理番号
7451—41
7451—41

④公開 昭和52年(1977)9月13日

発明の数 2
審査請求 未請求

(全 12 頁)

⑤アンモニアの高温高压合成方法及び装置

①特 願 昭52—24944

②出 願 昭52(1977)3月9日

優先権主張 ②1976年3月10日③イギリス国
①9452/76

⑦発 明 者 ハルドール・フレデリック・ア
クセル・トプサー
デンマーク国ウエドベグ・フリ

デンルンズ・ヴェイ30

⑦発 明 者 エリック・アンドレアス・ガム
デンマーク国フムレベグ・テグ
ルゴルツ・ヴェイ911

⑦出 願 人 ハルドール・トプサー・アクチ
エゼルスカベツト
デンマーク国リングビー・ニー
メレベエイ55

⑦代 理 人 弁理士 江崎光好 外1名

明 細 書

1. 発明の名称 アンモニアの高温高压合成方法及
び装置

2. 特許請求の範囲

1. 合成ガスプロセス流をして先ず放射状に
(半径方向に)第1触媒床を通過せしめ、次
いで間接熱交換により合成ガス流を冷却する
ための中間熱交換器を通過せしめ、更に放射
状に第2触媒床を通過せしめること及び転化
装置外郭(shell)とプロセス流とを冷却する
ために合成ガス供給流を用いることを包含す
る、アンモニアの高温高压合成方法であつて、
第1触媒床に供給する前に、少なくとも2種
の合成ガス供給流すなわち中間熱交換器で熱
交換ガス流として働く合成ガス供給流及びプ
ロセス流の温度調整のためにバイパス流とし
て働く合成ガス供給流を合体させることによ
り、プロセス流を得ることを特徴とする前記
方法。

2. 第3供給流が他の供給流と合体される前に、

転化装置の外郭を冷却する、特許請求の範囲
第1項記載の方法。

3. 中間熱交換器を経由した供給流を外郭冷却
用に用いる、特許請求の範囲第1項記載の方
法。

4. 供給流が転化装置の軸上の位置で合体され
る、特許請求の範囲第1項、第2項又は第3
項記載の方法。

5. 合体供給流を第1触媒床の外側に移行さ
せ、次いで第1触媒床の放射状中心方向に
(半径の中心方向に)通過せしめる、特許請
求の範囲第4項記載の方法。

6. 転化装置外郭：環状形を有し、共通軸上で
一直線となるように配置され、合成ガスプロ
セス流を順次通過せしめる第1触媒床及び第
2触媒床；上記触媒床間の合成ガスを間接熱
交換により冷却するための熱交換器；及び各
種合成ガス流を連絡させるための通路を提供
するために、触媒床の周囲及び転化装置外郭
の内部に環状空間を形成せしめる邪魔板及び

円筒板を包含する、アンモニアの高温、高圧転化（合成）装置であつて、供給流入口から導入された少なくとも2種の供給流のために複数の通路を設けること；プロセス流が第1触媒床を通過後供給流の一種と間接熱交換を行ない得るように、上記通路の一の内部に中間熱交換器を設けること；及び上記熱交換器を上記触媒床の一の中心に配置することを特徴とする前記装置。

7. 熱交換器が第1触媒床の中心に配置される、特許請求の範囲第6項記載の装置。
8. 転化装置外郭を通過し、第2供給流と合流される第3供給流を導入するための入口及び通路を有する、特許請求の範囲第6項又は第7項記載の装置。
9. 第2触媒床通過後のプロセス流と第3供給流との間接熱交換を行なうための第2熱交換器を有する、特許請求の範囲第8項記載の装置。
10. 熱交換器に導入される前に、第1供給流が

運転条件下では20体積%以下であり、普通には15～18体積%の範囲にあるからである。従つて、転化装置を出た合成ガス製品流から大部分のアンモニアを除去した後、残存濃度のアンモニアを含有する合成ガス流を転化装置に循環させ、新規供給の合成ガスとともに再使用するのが通例である。

しかしながら、合成ガスを圧縮し、循環させるために必要とされるエネルギーコストはアンモニア製造において重要な因子であるから、与えられた運転条件下において、触媒を通過する合成ガスの単位体積当りのアンモニアの製造量を増加させることができれば、エネルギーコストを著しく節減することとなるのである。換言すれば、触媒床を出た合成ガス製品流中のアンモニア濃度を高めることは、アンモニア合成プロセスの経済性にとって重要なことである。

アンモニアの合成は、発熱反応であるから、合成ガスの温度は、それが触媒床を通過する間に上昇する。そして上記温度が上昇すると、平

外郭に沿つて通過する、特許請求の範囲第6項又は第7項記載の装置。

11. 各種供給流を転化装置の軸上の位置で合体させる、特許請求の範囲第6項、第7項、第8項、第9項又は第10項記載の装置。
3. 発明の詳細な説明

本発明は、高温、高圧下にアンモニアを合成するための方法及び装置に関する。

アンモニアの合成は、3部の水素と1部の窒素から基本的に形成される合成ガスプロセス流を高温、高圧下に運転されるアンモニア転化装置中で、その中に配置された一又はそれ以上の触媒床を通過させることにより行なわれている。しかしながら、合成ガス中の水素と窒素の濃度が、アンモニア合成に必要な化学量論量に極めて近いものであつても、上記プロセス流が転化装置中を一回通過しただけでは、アンモニアへの完全転化は、達成され得ない。その理由は、水素と窒素とを化学量論的に含む合成ガス中のアンモニアの平衡濃度は、通常用いられる

平衡濃度が低アンモニア濃度に傾く。従つて、触媒又は合成ガスのいずれかを冷却することにより温度上昇を抑えることが肝要である。そして、上記の冷却を行なうため、いくつかの方法が知られている。例えば、英国特許第1,204,634号明細書には、転化装置中に2又はそれ以上の分離触媒床を設置し、ここに触媒を充填し、該触媒床間に冷却用合成ガスを導入することが開示されており、この方法は、簡易な手段でそれ程運転を複雑化することなく実施できるという利点を有するが、部分的に反応した合成ガスが、未反応合成ガスにより希釈されることとなり、最終触媒床を出る合成ガス製品中のアンモニア濃度が低下するという欠点を有する。

部分的に反応した合成ガスの希釈化は、間接冷却による冷却法により避けることができ、この目的のため、1個又はそれ以上の熱交換器が、転化器中の触媒床内又は2以上の分離触媒床の間に間接的に組み入れられている。このようにして、冷却用合成ガスが、上記熱交換器を循環

することにより、冷却が可能となり、冷却合成ガスもこれにより加熱され、アンモニア合成プロセスに用いられる。上記熱交換器に用いられる冷媒は、圧力水であつても良く、この圧力水は、その後蒸気生成に用いられる。

しかしながら、間接冷却方法は、現在迄工業的に広く用いられているとは言えない。その主な理由は、熱交換器及び該熱交換器に冷媒を送り、該熱交換器から冷媒を取り出すための連結管を装置内に組み入れるためには、スペースが必要となるからである。特に間接熱交換が蒸気生成に基づく場合には、冷却水を転化装置外郭(Shell)を介して外部蒸気生成器と連絡させねばならないので、かなり複雑な装置が必要となる。

本発明者らは、上記問題を解決するため種々検討した結果、ここに、スペースを殆んど必要とせず且つ極めて操作の容易な熱交換器を用いて、プロセス用合成ガスを触媒床間で冷却用合成ガスと間接的に熱交換して冷却する、新規な方

法及び装置を見出した。

すなわち本発明は、高温、高圧下にアンモニアを合成するための方法を提供するものであり、本発明のこの方法は、以下の工程を包含するものである。

- (a) 転化装置外郭を冷却するために、最初に外郭流として用いられる合成ガス供給流、中間熱交換器を冷却するために、交換流として用いられる合成ガス供給流及びプロセス流の温度を調整するためにバイパス流として用いられる合成ガス供給流を触媒床の共通軸に沿つた位置で合体させて、プロセス流を得る工程及び
- (b) 一定温度に保ちながら、上記プロセス流をして放射状に(半径方向に)第1触媒床を通過せしめ、次いで中間熱交換器を通過せしめ、更に放射状に第2触媒床を通過せしめる工程更に高温、高圧下にアンモニアを合成する上記方法を実施するための本発明の転化装置は、主要構成部分として以下のものを包含する。

- (a) 転化装置の外表面を構成し、実質上円筒型の転化装置外郭、
- (b) 同心円内部 多孔壁、同心円外部 多孔壁、及び前記多孔壁に固定されている2つの向い合つた触媒プレートとの間に設置され、合成ガスプロセス流を放射状に通過せしめる第1触媒床、
- (c) 第1触媒床の軸の一直線上にその軸を有し、第1触媒床を通過後の合成ガスプロセス流を放射状に通過せしめる、第1触媒床と同様の形状を有し、第1触媒床と同様に設置された第1触媒床よりも床長が大なる第2触媒床、
- (d) いずれかの触媒床の内部多孔壁の内部中心に設置され、合成ガスプロセス流を合成ガス交換流を用いる間接熱交換により冷却する中間熱交換器及び
- (e) 各種合成ガス供給流用の入口及び第1供給流を転化装置の軸上の位置で、上記熱交換器を出た交換流と合体せしめ、更にプロセス流温度を調整するためのバイパス流として働く

第2供給流と転化装置内で合体せしめるための手段

以下図面に基づき本発明を詳説する。

転化装置は、転化装置の外表面を構成する転化装置外郭11から成る。この転化装置外郭11には、合成ガス供給流用の入口、すなわち合成ガス外郭流用の入口12、合成ガス交換流用の入口13及び合成ガスバイパス流用の入口14が取り付けられている。更に転化装置外郭11には、合成ガス製品流用の出口15も取り付けられている。しかしながら、場合により、同一の供給流を最初に外郭流として、次いで交換流として供することができるので、第2図、第3図及び第5図に示すように、入口13を省略しても良い。

本発明の転化装置の主要な構成部分は、第1触媒床21、第2触媒床22、いずれかの触媒床の内部中心に組み入れられた中央熱交換器41及び他の触媒床の中心部を通つて伸びている中央移送管42である。この中央移送管42は、

一の供給流を移送するために働く。

第1図及び第6図に示された、転化装置外郭の底部にある底部熱交換器61は、本発明の転化装置の主要構成部分ではなく、第2図、第3図、第4図及び第5図に示すように場合により省略しても良い。

転化装置の主要部分及びもしあるならば付属底部熱交換器61の点検、保守のための解体を容易にするために、転化器外郭11は、除去可能な外郭蓋16を有するものであると良い。

2つの触媒床21及び22は、一直線上に共通軸の回りに配置される。この2つの触媒床は、この軸の回りに中央円筒空間を有する。中央熱交換器41は、一方の触媒床の円筒空間内に組み入れられており、又中央移送管42は、他の触媒床の円筒空間内に組み入れられている。

第1触媒床21は、環状であり、2つの同心円多孔壁である内壁23及び外壁24の間にある。これら多孔壁は、下端で、触媒プレート25に固定されており、この触媒プレート25は、

第1触媒床21中の触媒を保持する役目をしてい。これらの多孔壁は、上端で触媒プレート26により固定されており、該触媒プレート26は、第1触媒床21を封鎖し、同時に第2触媒床の触媒を保持する役目をする。第1触媒床21における触媒の充填及び排出を容易にするため、触媒プレート26として、除去可能な蓋 (removable lids 第1図には示されていない。) が設置され、この蓋は、第2触媒床が空のとき開放される。

第1触媒床21と同様に、第2触媒床22も環状で、2つの同心円内部多孔壁27と外部多孔壁28の間に存在する。これら多孔壁は、下端で触媒プレート26に固定されており、上端で触媒プレート29に固定されている。触媒プレート29は、触媒の充填、排出時には完全に取り除きが可能であるか又はその部分が開かれる。

最適プロセス条件を得るためには、第1触媒床21で必要とされるよりも多量の触媒が第2

触媒床22で必要とされる。従つて、第2触媒床22は、第1触媒床21よりも長くする必要がある。

中央熱交換器41は、第1触媒床21の円筒空間の中央に組み入れられている。中央熱交換器41と内部多孔壁23の間に第1触媒床21からのプロセス流を受け入れるための環状空間52がある。中央熱交換器41は、第1図に示すように複数の平行管を有するタイプのものでも良く、このタイプの場合、冷媒である交換流が上記平行管を通過し、他方環状空間52からのプロセス流は、第2触媒床22に向う前に加熱されるために、上記平行管の周囲を流れる。しかしながら、中央熱交換器41は、例えばラメラ (lamella) タイプの如く、同一の目的を達成する他のタイプのものでも良い。

中央移送管42は、第2触媒床22の中央円筒空間に組み入れられ、交換流を中央熱交換器41に移送する役目をする。中央移送管42と内部多孔壁27との間には、プロセス流を第2

触媒床22に受け入れるための環状空間53がある。

円筒板31と転化装置外郭11とにより、入口12より導入される合成ガス外郭流用の環状空間55が生じ、又円筒板31と第2触媒床22との間に、環状空間54が生ずる。もう一つの円筒板32は、第1触媒床21を包囲し、環状空間51を提供する。合成ガス外郭流を環状空間55から底部熱交換器61を介して環状空間51に伝達させるための他のいくつかの通路もある。これらの通路を通過しながら、合成ガス外郭流は、入口14より導入された合成ガスバイパス流及び中央熱交換器41からの合成ガス交換流と合体し、後に第1触媒床21を通過する合成ガスプロセス流となる。

各供給流用通路は、触媒床の共通軸にある点45で合流する。この点45から、合成ガス流は、放射状通路 (radial passage) 46により外方向に放射状に (外部半径方向に) 向けられ、第1触媒床21の外側に達する。放射状通路46

は、第1触媒床21に導入されたとき、合成ガスに温度差が認められないように供給合成ガスを混合する働きを有する。

第2図、第3図、第4図、第5図及び第6図は、本発明の転化装置の他の具体例を示すものである。そして、第2図、第3図、第4図及び第5図においては、第1図に示されている底部熱交換器61が省略されており、又第5図及び第6図においては、第2触媒床22を通過する流れの方向が前記とは逆に内側方向になつている。更に各構成部分の位置が、第1図と対比し変動しているから、装置内の供給流用の入口の再配置及び合成ガス流用の通路の変更が必要となる。しかしながら、転化装置の主要構成部分及びこれらの機能は、不変であり、すべての図面において、同一の数字は、同様の構成部分を示すために用いられている。それ故に、第2図、第3図、第4図、第5図及び第6図の説明は、第1図と顕著に異なる点を中心にして述べることにとする。

触媒床22の上部に設置され、第1触媒床21は、触媒プレート26により固定され、触媒プレート29により封鎖されており、他方第2触媒床22は、触媒プレート25により固定され、触媒プレート26により封鎖されている。他のすべての点においても触媒プレート25、26及び29は、第1図における同一の機能を有する。中央熱交換器41は、第1触媒床21の高さの所に組み入れられており、2つの触媒床の相対的位置の変更が各種合成ガス用の通路を単純化し、その結果環状空間51を提供するための板32は必要でなくなり省略されることが第4図より明らかである。

第5図においては、第1触媒床21、第2触媒床22及び中央熱交換器41の相対的位置は、第4図におけると同様であるが、各種合成ガス流の通路の再配置を行ない、プロセス流が第2触媒床22内において内側に流れるように、すなわち環状空間54から第2触媒床22を經由して環状空間53に移行するようにした。

第2図において、合成ガス外郭流は、後に交換流として用いられる。従つて、合成ガス交換流用の入口13は、省略されており、中央移送管42は、外郭流を受け入れ、これを中央熱交換器41に移送し、中央熱交換器41で外郭流が交換流として動くように、連結されている。その他の点に関しては、底部熱交換器61が省略されていることを除き、転化装置の各構成部分は、第1図と対応するように配置されている。

第3図と第2図との唯一の相違は、第3図において、中央熱交換器41が第2触媒床22の高さのところに組み入れられていることであり、このことは、外郭流が中央熱交換器41を直接通過し、交換流として働き、他方中央移送管42は、中央熱交換器41からの交換流を受け入れることを意味する。そして、その結果、環状空間53は、内壁27と中央熱交換器41との間に位置し、又環状空間52は、内壁23と中央移送管42との間に位置することとなる。

第4図においては、第1触媒床21は、第2

このことは、特に第4図の触媒プレート26が、第5図においては、第1触媒床21と第2触媒床22との間に通路を提供するため、2つの別個の触媒プレート26a及び26bに置き換わる必要がある。同様に第4図において省略された環状板32を第5図においては挿入し、第1触媒床21の回りに環状空間51を設けている。

最後に第6図に示した具体例は、第6図において底部熱交換器61が設置されている他は第5図に示したものと実質的に類似している。

第5図及び第6図に示した転化装置の具体例においては、2つの触媒床21と22の間に通路を提供するために別個の触媒プレート26a及び26bを存在せしめたが、これにより、点検、保守又は触媒交換のため転化装置から第1触媒床21を中央熱交換器41とともに取り出すこともできる。

高温、高圧でアンモニアを合成する本発明の方法を第1図～第6図に示された転化装置に基づいて、以下に概説する。

2つの触媒床を通過する合成ガスのプロセス流は、2又はそれ以上の合成ガス供給流を合体させることにより得られる。そして合体される合成ガス供給流は、入口12から導入される外郭流、入口13から導入される交換流及び入口14から導入されるバイパス流である。底部熱交換器が存在しない場合には、外郭流は、後に交換流として供せられ、交換流用の入口13は省略しても良い(第2図、第3図、第5図)が、たとえ底部熱交換器が存在しなくても、外郭流に供する供給流と交換流として供する供給流とを別個に供給することが、操作にフレキシビリティを持たせるために好ましい(第4図)。底部熱交換器が存在する場合には必ず、外郭流として供する供給流と交換流として供する供給流とを別個に供給することが必要となる(第1図、第6図)。

各種供給ガス流の流速及び温度を適当に調整することにより、第1触媒床に充填される触媒に要求される温度に設定された合成ガスプロセ

スの組成は、製品流の組成及び本実施例1の関連データとともに表1に示されている。転化装置は、約 270 kg/cm^2 の圧力で運転される。

約 120°C の温度を有する、 $151.480\text{ Nm}^3/\text{hr}$ の合成ガス外郭流を入口12から導入する。外郭流は、先ず環状空間55を通過し、転化装置外郭を適度に冷却し、極度に高温となるのを防ぐ。その後外郭流は、底部熱交換器61に入り、後に出口15から転化装置を出る製品流と間接熱交換して加熱される。約 120°C の温度を有する、 $191.450\text{ Nm}^3/\text{hr}$ の合成ガス交換流は、入口13から導入され、中央移送管42を経て、中央熱交換器41に入り、この中央熱交換器41で、第1触媒床21から第2触媒床22に向かうプロセス流を冷却する。交換流は、反応温度に近接した温度で中央熱交換器41を出、底部熱交換器61からの外郭流と合体する。

約 120°C の温度を有する、 $40.000\text{ Nm}^3/\text{hr}$ の合成ガスバイパス流は、入口14から導入さ

ス流は、環状空間51から放射状に内方向(半径中心方向)に第1触媒床に入り、更に環状空間52に達する。その後合成ガスプロセス流は、先ず中央熱交換器41の高温側を通過し、合成ガス交換流と間接熱交換されて、冷却され、環状空間53(第1図～第4図)又は環状空間54(第5図及び第6図)に入る。更に合成ガスプロセス流は、放射状に第2触媒床に入り、最終的に環状空間54(第1図～第4図)又は環状空間53(第5図及び第6図)に合成ガス製品流が得られる。

実施例1

アンモニア $1,000$ メートルトン/日の製造能力を有し、第1図に示した転化装置から成るアンモニアプラントを用いて、本発明の方法を実施する。

2つの触媒床は、粒径 $1.5\sim3$ mmのアンモニア合成触媒で充填される。触媒体積は、第1触媒床21で 12 m^3 、第2触媒床22で 29 m^3 である。各触媒床に供給され、排出される合成ガ

れ、触媒床の共通軸に沿った位置で、外郭流及び交換流と合体し、 360°C の温度を有する、 $382.930\text{ Nm}^3/\text{hr}$ の合成ガスプロセス流となる。プロセス流を構成する、3種の合成ガス流の相対量は、運転中に調整され、第1触媒床21の入口で所望の温度となる。

プロセス流は、環状空間51を経由して、第1触媒床21に入り、発熱反応であるが故に、第1触媒床21内のプロセス流の温度は 520°C に上昇し、アンモニア濃度は、 3.5 体積%から 14.4 体積%に上昇する。次いでプロセス流は、中央熱交換器41を通過し、 390°C に冷却され、環状空間53を経て、 472°C に加熱下第2触媒床22に入り、アンモニア濃度は、 20.8 体積%に上昇する。合成ガスプロセス流は、その後環状空間55に受け入れられ、更に冷却用底部熱交換器61に入り、最終的には約 360°C で出口から排出される。

実施例2～6

本発明に従ってアンモニア合成を行なった実

実施例2～6の結果は、表1に示されている。実施例2～6は、第2図～第6図に示された転化装置を用いた以外は、実施例1と同様に行なわれた。

表 1

実施例 No.	1 - 6
転化装置	第1図～第6図に示したもの
転化装置の製造能力 (メートルトン/日)	1,000
触媒体積 (m ³)	
第1触媒床	12
第2触媒床	19
供給流及び製品流の組成 (体積%)	
供給流 (第1触媒床入口)	H ₂ 65.4 H ₂ 21.1 NH ₃ 3.5 不活性ガス 12.0
供給流 (第1触媒床出口)	H ₂ 54.2 H ₂ 18.1 NH ₃ 14.4 不活性ガス 13.3
製品流 (第2触媒床出口)	H ₂ 48.9 H ₂ 16.3 NH ₃ 20.8 不活性ガス 14.0

表 2

実施例 No.	1	2	3	4	5	6
図面 No.	1	2	3	4	5	6
流量 Nm ³ /h						
外引流	151,480	322,930	322,930	322,930	322,930	151,480
交換流	191,450					211,450
バイパス流	40,000	60,000	60,000	60,000	60,000	40,000
総プロセス流 (第1触媒床入口)	382,930	382,930	382,930	382,930	382,930	382,930
製品流 (転化装置出口)	328,090	328,090	328,090	328,090	328,090	328,090
温度 °C						
供給流 (転化装置入口)	110	237	237	237	237	150
プロセス流 (第1触媒床入口)	360	360	360	360	360	360
" (第1触媒床出口)	520	520	520	520	520	520
" (第2触媒床入口)	390	390	390	390	390	390
" (第2触媒床出口)	472	472	472	472	472	472
" (転化装置出口)	345	472	472	472	472	385

実施例 1～6 から明らかなように、底部熱交換器 61 は、製品ガスが転化装置外郭の出口 15 から転化装置を出る前に、製品ガスを冷却する働きをし、この冷却がなければ、製品ガスがかなりの高温で転化装置外郭から排出することになる。そしてこのような高温であると、転化装置の建設に際して耐熱性材料をより注意深く選択する必要があるが、高压蒸気の製造のために製品ガスの熱を利用するのが望ましい場合には、底部熱交換器は省略される。従つて、実施例 2～5（第 2 図～第 5 図）においては、底部熱交換器は省略されている。

本発明の方法及び装置の大きな経済的利点は、触媒床を通過した合成ガスの単位体積当りのアンモニア含量が高い製品ガスを得ることができることである。このような高アンモニア含量の製造ガスを得ることができるのは、2つの触媒床間の合成ガスプロセス流を希釈することなく、冷却できること及び各触媒床の入口のプロセス流の温度を所望の温度に設定することができる

アンモニア濃度 5.5 % の合成ガスが 360℃ の温度で第 1 触媒床に導入される。プロセス流が第 1 触媒床を通過している間に、この 2つのパラメーターは、実線 1-2 に沿つて変動し、その結果第 1 触媒床の出口における温度は 520℃ となり、アンモニア濃度も 14.4 % となる。第 2 触媒床に導入される前に、合成ガスプロセス流は、間接熱交換により冷却されるが、これは、2つのパラメーターが実線 2-3a に沿つて変動することによつて示される（アンモニア濃度は一定に保たれる）。

第 2 触媒床の入口における温度は 390℃ であり、アンモニア濃度は、14.4 % である。

プロセス流が第 2 触媒床を通過している間に 2つのパラメーターは、実線 3a-4 に沿つて変動し、第 2 触媒床の出口の温度は 472℃ となり、アンモニア濃度も 20.8 % となる。

第 7 図において点線で示された他の例は、プロセス流を触媒床間で間接熱交換することにより冷却する代りに、直接冷却により冷却を行な

ことに基づく。アンモニア合成触媒を最適な状態で動かせるために、各触媒床の温度は、互いに別個に選定する必要があり、このような温度の選定は、本発明の方法及び装置においては、各種の合成ガス流の相対速度を種々変化させることができるので、可能である。

本発明の方法及び装置の上記利点は、合成ガスプロセス流が 2つの触媒床を通過する時の温度とアンモニア濃度の変化を示す第 7 図により、更に明らかなものとなる。第 7 図において、線 A は、実施例 1 で用いられた圧力条件と合成ガス濃度条件下における熱力学的平衡濃度を示す。線 B は、上記理論線に対応して平衡を 10℃ だけ変動させた場合の線を示し、この線は、実際に得られている。

第 7 図の残りの線は、合成ガスプロセス流が触媒床を通過した場合の合成ガスプロセス流の温度及びアンモニア濃度の変化を示すものである。実線で示される第 1 の例は実施例 1 の条件下にアンモニア合成を行なつた場合に対応し、

つた以外は、実施例 1 と同様の条件下にアンモニア合成を行なつた場合の温度とアンモニア濃度との関係を示すものである。この場合には、第 1 触媒床においては、何の影響もなく、パラメーターは、実線 1-2 に沿つて変動するが、第 1 触媒床を出た合成ガスに添加される冷却用ガスのアンモニア濃度が低いので、冷却期間中にアンモニア濃度が減少する。従つて、2つのパラメーターは、点線 2-3b に沿つて変動する。第 2 触媒床入口の温度は、390℃ であるが、希釈されたため、アンモニア濃度は、わずかに 10.5 % である。第 2 触媒床を通過中に、2つのパラメーターは点線 3b-4 に沿つて変動し、第 2 触媒床出口の温度は、493℃ であり、又アンモニア濃度は、18.0 % である。

第 7 図より本発明の方法及び装置を使用してアンモニア合成を行なうことにより、アンモニア合成に利点をもたらされることが例証された。本発明の実施により、触媒床を通過する合成ガスの単位体積当りのアンモニア製造量が著しく

増大することが明らかとなつた。

4. 図面の簡単な説明

第1図～第6図は、本発明の転化装置の具体例の縦断面図である。

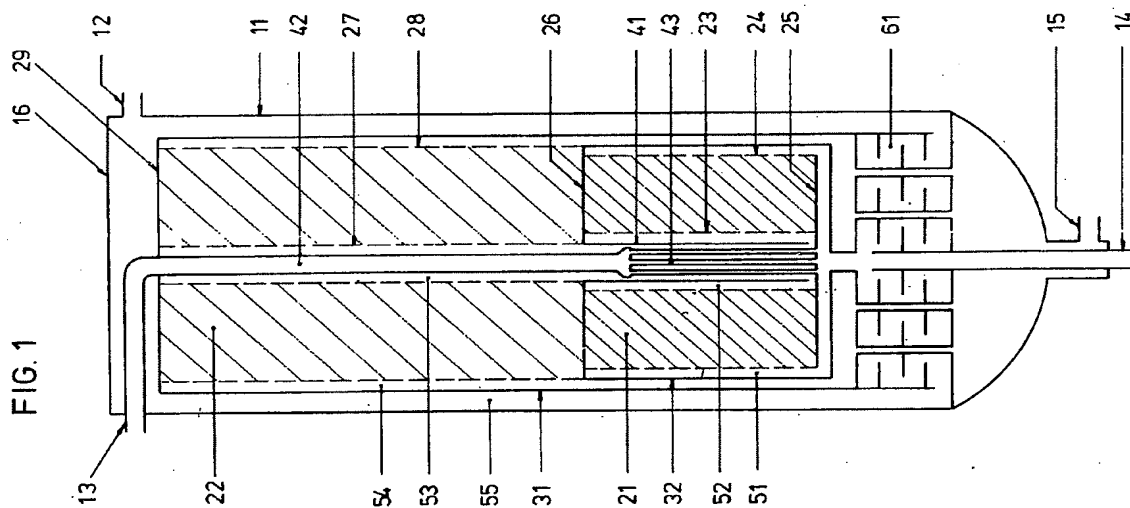
第7図は、本発明の方法と公知の方法とのアンモニア製造量の比較図である。

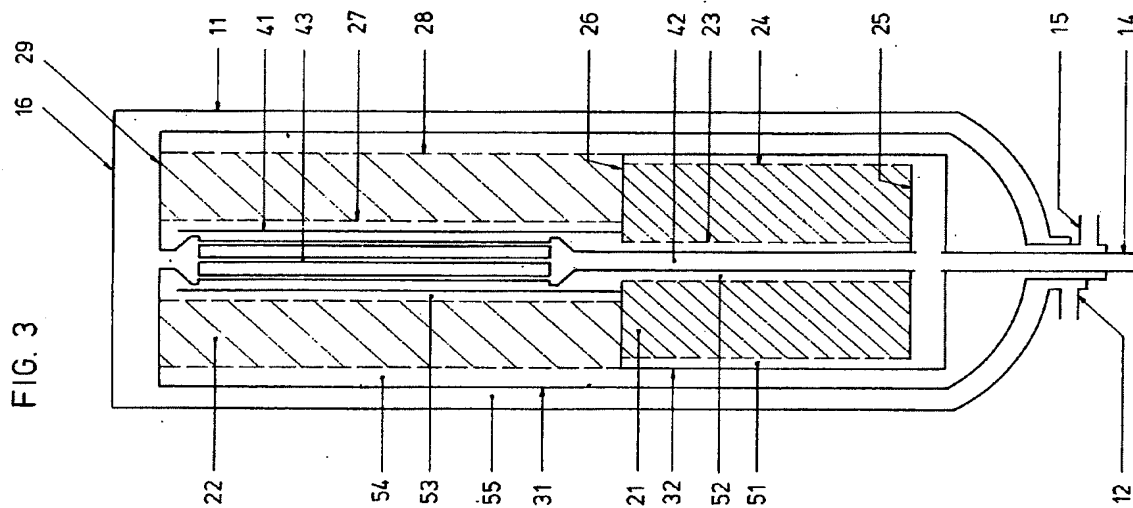
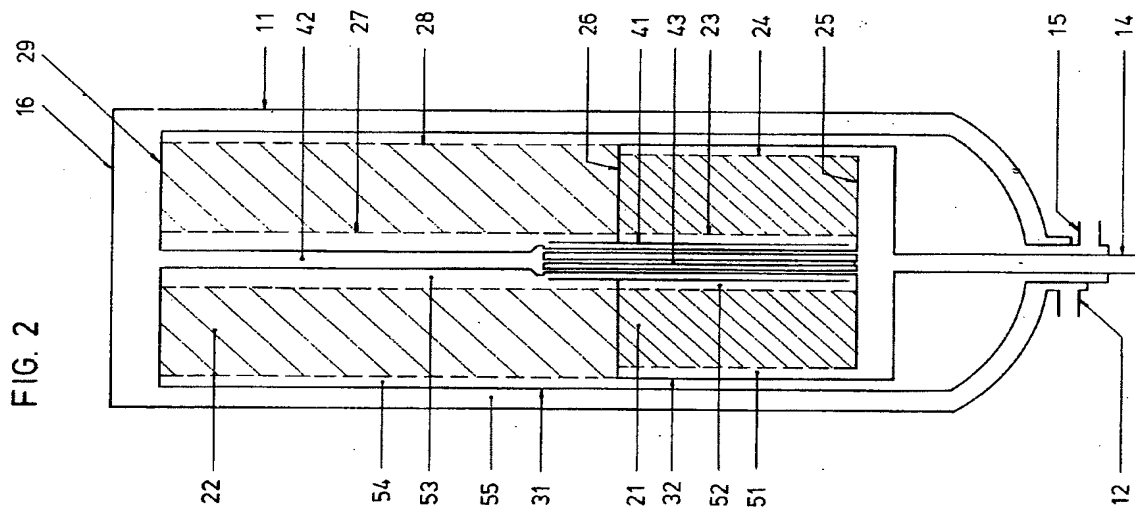
ここに上記第1図～第6図において示された下記符号は以下の意味を有する。

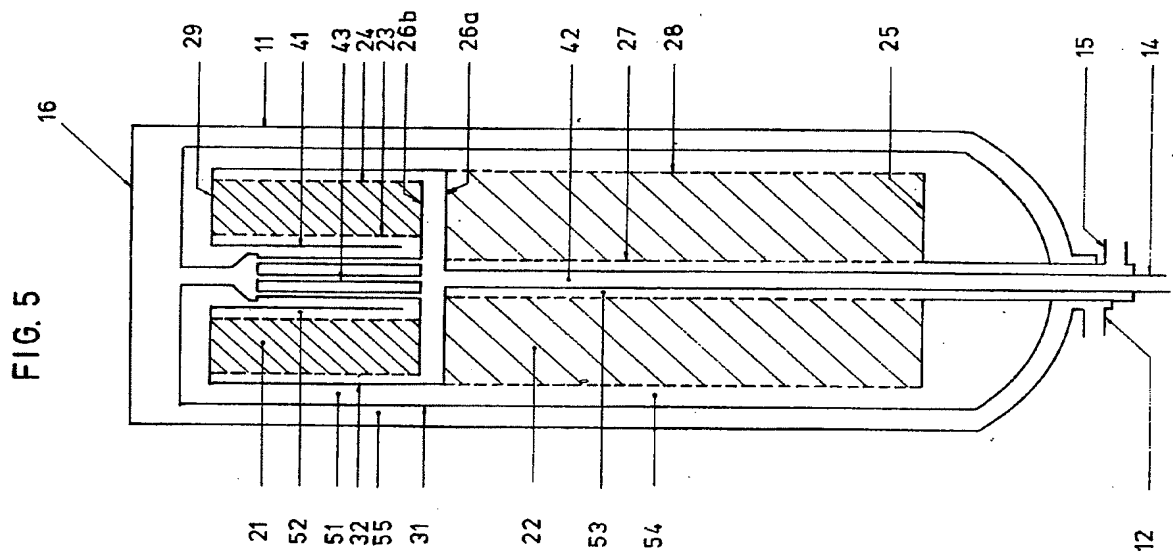
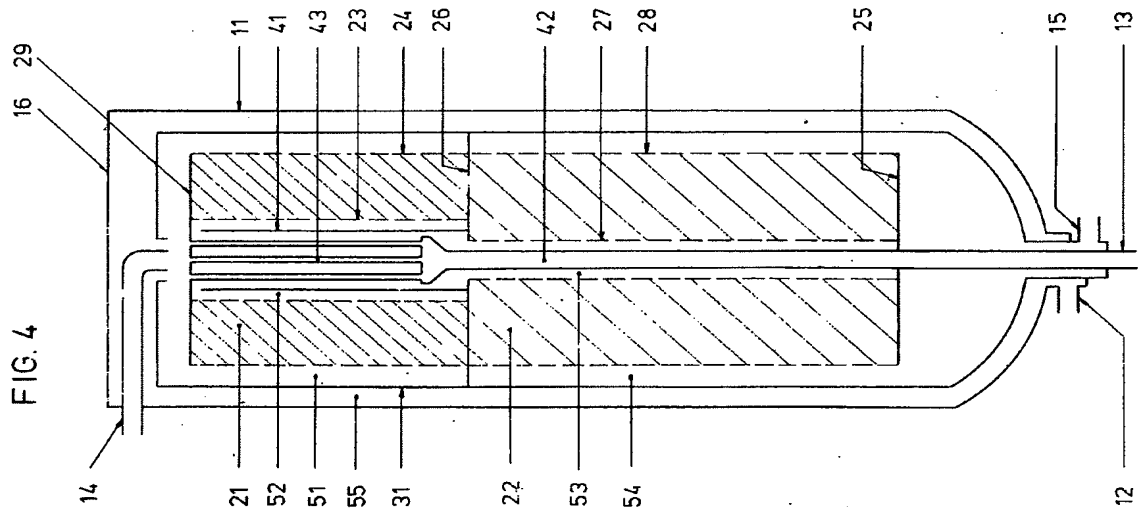
- 11 … 転化装置外郭
- 12 … 外郭流供給用入口
- 13 … 交換流供給用入口
- 14 … バイパス流供給用入口
- 15 … 製品流出口
- 16 … 外郭蓋
- 21 … 第1触媒床
- 22 … 第2触媒床
- 23 … 内部多孔壁
- 24 … 外部多孔壁
- 25 … 触媒プレート
- 26 …

- 26a … 触媒プレート
- 26b …
- 27 … 内部多孔壁
- 28 … 外部多孔壁
- 29 … 触媒プレート
- 31 … 円筒板
- 32 …
- 41 … 間接熱交換器
- 42 … 移送管
- 43 … 平行管
- 51 … 環状空間
- 52 …
- 53 …
- 54 …
- 55 …
- 61 … 底部熱交換器

代理人 江崎光好
代理人 江崎光史







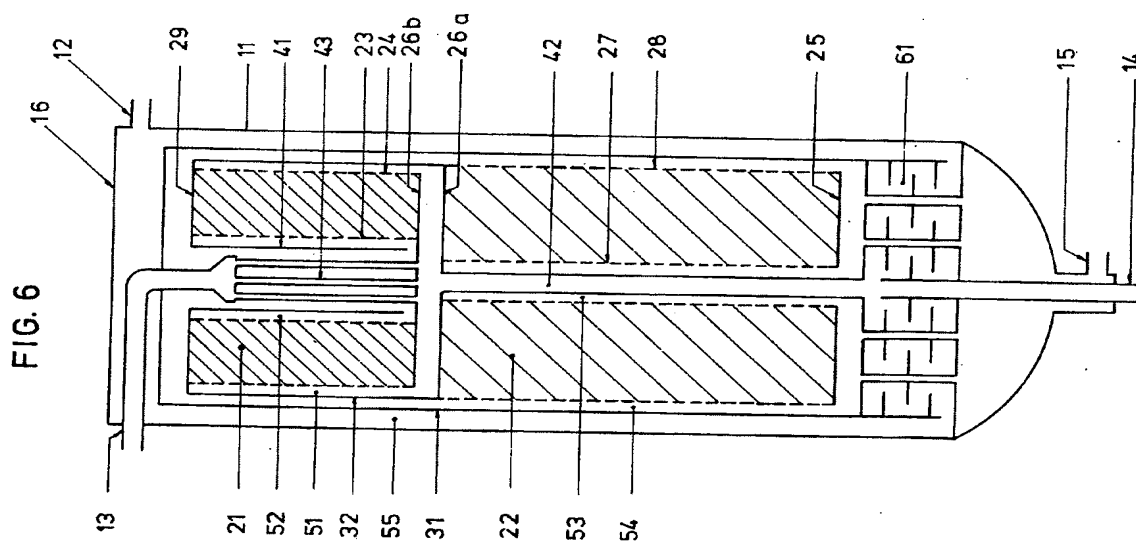
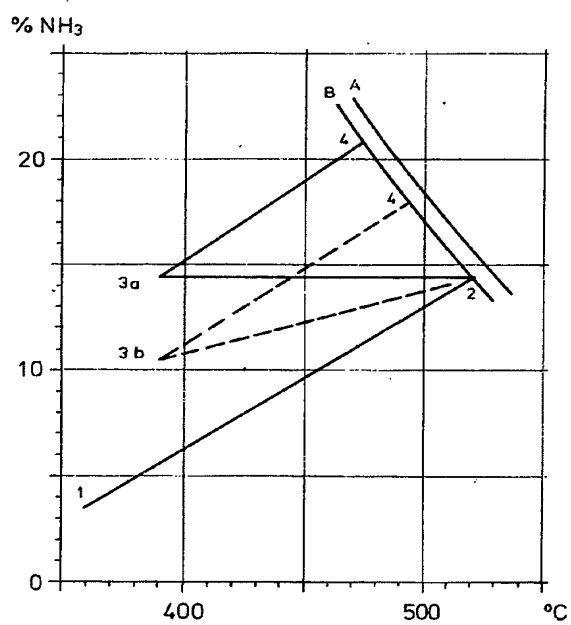


FIG. 7



特許法第17条の2による補正の掲載

昭和 52 年特許願第 24944 号(特開昭
52-109499 号 昭和 52 年 9 月 13 日
発行公開特許公報 52-1095 号掲載)につ
いては特許法第17条の2による補正があったので
下記の通り掲載する。

Int. Cl.	識別 記号	庁内整理番号
COIC 1/04		6953 46

手 続 補 正 書

昭和 55 年 2 月 20 日

特許庁長官 川 原 能 雄 殿

1. 事件の表示

昭和 52 年特許願第 24944 号

2. 発明の名称

アンモニアの高圧高圧合成方法及び装置

3. 補正をする者

事件との関係 出 願 人

氏 名 ハルドール・トプサー・アクチエセル
(名 称) スカベント

4. 代理人

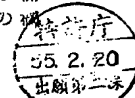
住 所 東京都港区虎ノ門二丁目8番1号(虎の門電気ビル)
[電話 03 (502) 1476 (代表)]

氏 名 弁理士(4013) 江 崎 光 好 氏
(名 称) 江崎光好

5. 補正の対象

- (1) 明細書の発明の詳細な説明の欄
(2) 明細書の図面の簡単な説明の欄
(3) 添附図面

(1)



6. 補正の内容

- (1) 明細書才 9 頁才 3 行の「同心円内部、多孔壁、同心円外部、多孔壁」を「同心円内部多孔壁、同心円外部多孔壁」と訂正する。
- (2) 才 10 頁才 7 行の「交換流の」を「交換流用の」と訂正する。
- (3) 才 13 頁才 12 ~ 13 行の「加熱される」を「冷却される」と訂正する。
- (4) 才 20 頁才 2 行の「環状空」を「環状空間」と訂正する。
- (5) 才 31 頁才 10 行と才 11 行との間に下記の記載を挿入する。
- 「 4.5 通路合流点
4.6 放射状通路」
- (6) 才 1 図 ~ 才 6 図を朱記のように補正しますので、
御 加筆をお願いします。



